

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-287735

(43)Date of publication of application : 27.10.1998

(51)Int.Cl.

C08G 63/08
C08G 63/64
C08G 63/78
C08G 63/84
C08K 5/07
C08K 5/092
C08L 67/04

(21)Application number : 09-110171

(71)Applicant : KANEBO LTD

(22)Date of filing : 10.04.1997

(72)Inventor : HIRAI YOSHIKI
HORIKAWA YUKIO
KIMURA YOSHIHARU

(64) POLYLACTIC ACID COMPOSITION, PRODUCTION THEREOF, AND MOLDED ARTICLE PREPARED THEREFROM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a polylactic acid compsn. which does not require a posttreatment after polymn., is excellent in heat stability, and does not exhibit the molwt. decrease or discoloration in molding by subjecting a lactide of a cyclic dimer of lactic acid (L-isomer and/or D-isomer) alone or together with a polyhydric alcohol, a lactone, etc., to ring-opening polymn. in the presence of a polycarboxylic acid.

SOLUTION: Pref., triacetylacetonatoaluminum in an amt. of 0.3-3 mol% based on a lactide is used as the catalyst for producing polylactic acid, and the use of tin octoate in an amt. of 0.003-0.0001 mol% together with the above compd. is pref. A polycarboxylic acid to be incorporated into polylactic acid is e.g. oxalic acid, succinic acid, or terephthalic acid, citric acid being esp. pref., and the amt. of it incorporated is pref. 0.001-1 wt.% of the lactide. The polymn. is conducted pref. at the m.p. of the resultant polymer or higher but not higher than 200° C and in an anhydrous atmosphere. A copolymer mainly comprising lactic acid can also be used as polylactic acid.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C): 1998,2000 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-287735

(43) 公開日 平成10年(1998)10月27日

(51) Int. Cl.⁴

識別記号

F I

C 0 8 G 63/08

C 0 8 G 63/08

63/64

63/64

63/78

63/78

63/84

63/84

C 0 8 K 5/07

C 0 8 K 5/07

審査請求 未請求 請求項の数11 F D (全 6 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-110171

(22) 出願日 平成9年(1997)4月10日

(71) 出願人 000000952

鐘紡株式会社

東京都墨田区墨田五丁目17番4号

(72) 発明者 平井 良明

大阪府大阪市都島区友通町1丁目6番1-306号

(72) 発明者 堀川 幸雄

大阪府松原市栄区1丁目27番12号

(72) 発明者 木村 良晴

滋賀県近江八幡市蓮町1126-1

(54) 【発明の名称】 ポリ乳酸組成物およびその製造方法ならびに該組成物の成形品

(57) 【要約】

【課題】成形時の分子量低下が小さく、着色がないポリ乳酸組成物、ラクチド溶融開環重合において重合後の後処理を必要としない熱安定性に優れかつ着色のないポリ乳酸の製造方法および該ポリ乳酸組成物からなる成形品を提供する。

【解決手段】ポリ乳酸又はポリ乳酸共重合体と、多塩基カルボン酸化合物とからなり、さらにはトリスアセチルアセトナトアルミニウムまたは該ポリ乳酸の乳酸単位に対して0.00005～0.0015モル%のオクチル酸スズとからなるポリ乳酸組成物。ラクチド又はラクチドと他のモノマーとを溶融開環重合する際に多塩基カルボン酸化合物を共存させ、さらには触媒としてトリスアセチルアセトナトアルミニウムまたは該ラクチドに対して0.0001～0.003モル%のオクチル酸スズを用いるポリ乳酸組成物の製造方法。および該ポリ乳酸組成物を溶融成形して成る成形品。

(2)

特開平10 287735

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 L-及び/又はD-乳酸からなるポリ乳酸と、多塩基カルボン酸化合物を含んで成るポリ乳酸組成物。

【請求項2】 トリスアセチルアセトナトアルミニウムを含んで成る請求項1記載のポリ乳酸組成物。

【請求項3】 L-及び/又はD-乳酸からなるポリ乳酸の乳酸単位に対して0.00005～0.0015モル%のオクチル酸スズを含んで成る請求項1記載のポリ乳酸組成物。

【請求項4】 ポリ乳酸がL-及び/又はD-乳酸と、ポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪酸ポリエステル、ラクトン、ラクタムおよび環状カーボネートよりなる群から選ばれた少なくとも一種の化合物に由来するセグメントとの共重合体であることを特徴とする請求項1、2又は3記載のポリ乳酸組成物。

【請求項5】 多塩基カルボン酸化合物がクエン酸であることを特徴とする請求項1、2、3又は4記載のポリ乳酸組成物。

【請求項6】 L-及び/又はD-乳酸の環状二量体であるラクチドを溶融開環重合することによりポリ乳酸組成物を製造するに際し、多塩基カルボン酸化合物を共存させる事を特徴とするポリ乳酸組成物の製造方法。

【請求項7】 乳酸の環状二量体であるラクチドと、ポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪酸ポリエステル、ラクトン、ラクタムおよび環状カーボネートよりなる群から選ばれた少なくとも一種の化合物とを溶融開環重合することによりポリ乳酸組成物を製造するに際し、多塩基カルボン酸化合物を共存させることを特徴とするポリ乳酸組成物の製造方法。

【請求項8】 ラクチドの溶融開環重合触媒としてトリスアセチルアセトナトアルミニウムを用いることを特徴とする請求項6又は7記載のポリ乳酸組成物の製造方法。

【請求項9】 ラクチドの溶融開環重合触媒として該ラクチドに対して0.0001～0.003モル%のオクチル酸スズを用いることを特徴とする請求項6又は7記載のポリ乳酸組成物の製造方法。

【請求項10】 多塩基カルボン酸化合物がクエン酸であることを特徴とする請求項6、7、8又は9記載のポリ乳酸組成物の製造方法。

【請求項11】 請求項1、2、3、4又は5記載のポリ乳酸組成物からなることを特徴とする成形体。

【発明の詳細な説明】

100011

【発明の属する技術分野】本発明は、衣料用、日用生活用、医薬品材料用、医療材料用、および農業、漁業、工業、建築土木等の産業資材用に利用できる、粉末、織

3

維、フィルム、および成形材料として好適なポリ乳酸組成物、その製造方法および該組成物からなる成形体に関する。

【0002】

【従来の技術】ポリ乳酸は、澱物を発酵させて得られる乳酸を原料とするため、従来の石油由来の合成ポリマーに対して地球資源保護の観点から注目を集めている。また、ポリ乳酸は水中、水中および生体内で比較的容易に加水分解され、自然界に広く存在し動植物に対して無害な乳酸となり、最終的には代謝あるいは微生物分解によって二酸化炭素と水とに分解されるため、生分解性材料としても注目されている。更に近年は、特に生体に対する安全性が高いことから、医薬、医療分野への応用が盛んに行われている。

【0003】ポリ乳酸の合成法としては、乳酸をオリゴマー化した後、これを解重合して環状二量体であるラクチドを単離し、このラクチドを開環重合させて得る方法が知られている。この方法は、ラクチドの精製を充分に行いさえすれば比較的容易に高分子量のポリ乳酸が得られるため、非常に有用な方法である。

【0004】このラクチド開環重合によるポリ乳酸の製造は溶剤中での溶液重合も可能であるが、多大な設備が必要で、製造コストも高くなる上に、得られた重合生成物から使用した溶剤を完全に除くことは難しいため、工業的には無溶媒での溶融重合の方が好ましい。溶融重合の場合、重合反応の温度条件は系の攪拌や重合後の取り出しの点から生成したポリ乳酸の融点より高くする必要があり、例えばポリL-乳酸モノマーの場合、180℃以上であることが必要である。

【0005】一方、このラクチド開環重合においては種々の金属化合物が触媒作用を有することが既に知られており、その使用によって重合速度の向上が図られている。特にオクチル酸スズ（以下、Sn(Oct)と略記する）が触媒活性の高さ、およびFDA(Food and drug administration:アメリカ食品薬品局)に安定剤としてその使用が認可されている点などから好ましく用いられている。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】ポリ乳酸は本来は無色透明のポリマーであり、その特性を活かした応用が可能である。しかし、ポリ乳酸は溶融状態で長時間おかれると黄色に着色するため、着色のないポリ乳酸を得るためには重合および成形加工は速やかに行う必要がある。前述のSn(Oct)を重合触媒として用いる場合には、ラクチドに対して0.003モル%より多く使用すれば、180℃で数十分以内で重合が完結するため、ほとんど着色しない。ところが、上記のSn(Oct)がポリマー中に残存すると、成形加工時にこれがポリ乳酸の分解触媒として作用し、分子量を著しく低下させるため、充分な強度をもつ成形品が得られない。そこで

50

(3)

特開平10-287735

3

現状では、重合後に再沈殿あるいは洗浄等の方法で重合生成物からSn(Oct)₂を除くという方法が取られているが、工程が煩雑となり、製造コストも高くなるといった問題点がある。

【0007】また、Sn(Oct)₂の使用量をラクチドに対して0.003モル%以下にまで低減すれば、得られたポリ乳酸の熱安定性は向上し、成型時の分子最低は少なくなるが、重合時間が180分で100分以上必要となり、重合時の着色は避けられない。

【0008】一方、本発明者等は先にトリノセチルノセトナトアルミニウム(以下、Al(Acac)₃と略記する)を触媒として用いて得られたポリ乳酸が非常に熱安定性に優れていることを見出している。しかし、Al(Acac)₃はSn(Oct)₂に比べると触媒活性が小さく、ラクチドに対して数モル%程度使用しても180℃で100分以上の重合時間を必要とするため、これもやはり重合時の着色は避けられない。

【0009】従って、製造コストの点で最も工業的利用価値の高いラクチド溶融開環重合で、かつ重合後の後処理無し、という方法から得られるポリ乳酸は、熱安定性と着色という相反する問題点を抱えている。本発明は上記の実情に鑑みなされたものであって、成型時の分子最低下が小さく着色がないポリ乳酸組成物、また、ラクチド溶融開環重合において重合後の後処理を必要としない、熱安定性に優れ、かつ着色のないポリ乳酸組成物の新規な製造方法、および該ポリ乳酸組成物からなる成形体の提供を目的とするものである。

【0010】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するための本発明は、L-及び/又はD-乳酸から成るポリ乳酸、または、L-及び/又はD-乳酸とポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪族ポリエステル、ラクトン、ラクタム、および環状カーボネートよりなる群から選ばれた少なくとも一種の化合物に由来するヒグメントとの共重合体であるポリ乳酸と多塩基カルボン酸化合物とからなり、さらにはAl(Acac)₃または該ポリ乳酸の乳酸単位に対して0.00005~0.0015モル%のSn(Oct)₂とからなるポリ乳酸組成物を特徴とするものである。

【0011】また、いまひとつの発明は、乳酸の環状二量体であるラクチド、または、該ラクチドとポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪族ポリエステル、ラクトン、ラクタム、および環状カーボネートよりなる群から選ばれた少なくとも一種の化合物とを溶融開環重合することによりポリ乳酸を製造するに際し、多塩基カルボン酸化合物を共存させ、さらには触媒としてAl(Acac)₃または該ラクチドに対して0.0001~0.003モル%のSn(Oct)₂を用いることを特徴とするポリ乳酸組成物の製造方法である。

4

【0012】さらに、いま一つの発明は、L-及び/又はD-乳酸から成るポリ乳酸または、L-及び/又はD-乳酸とポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪族ポリエステル、ラクトン、ラクタム、および環状カーボネートよりなる群から選ばれた少なくとも一種の化合物に由来するヒグメントとの共重合体であるポリ乳酸と多塩基カルボン酸化合物とからなり、さらにはAl(Acac)₃または該ポリ乳酸の乳酸単位に対して0.00005~0.0015モル%のSn(Oct)₂とからなるポリ乳酸組成物からなる成形体である。

【0013】

【発明の実施の形態】本発明に用いられるラクチドは前述したように乳酸をオリゴマー化した後解重合することによって得られる乳酸の環状二量体である。乳酸にはL-乳酸とD-乳酸が存在し、それに伴ってラクチドにもL体、D体、メソ体、ラセミ体が存在する。本発明に用いられるラクチドの光学純度は特に限定されるものではないが、得られる高分子量ポリ乳酸の融点はポリ乳酸の光学純度によって決定され、高純度のものほど高融点のポリ乳酸が得られるため、より耐熱性の高いポリ乳酸を望むならば高光学純度のラクチドを用いることが好ましい。

【0014】ラクチドの開環重合においては水酸基を有する化合物が重合の開始剤として働くため、生成するポリ乳酸の分子量は重合原料中の水酸基濃度によって決定される。例えば、ホモポリマーの場合、重量平均分子量20万以上のポリ乳酸を得るためには原料ラクチド中の水分量はb.p.p.m~600p.p.mの範囲にあることが必要である。また、コポリマーの場合には水分量以外に、用いるモノマーの水酸基当量と配合量によっても得られるポリ乳酸の分子量は左右され、水酸基当量が小さいものを多量に配合する、すなわち重合原料中の水酸基濃度が大きくなるほど得られるポリ乳酸の重合度は小さくなる。

【0015】本発明において用いられる多塩基カルボン酸化合物とは一分子中にカルボキシル基を二つ以上含む化合物で、そのようなものとしては、シュウ酸、コハク酸、マロン酸、トリカルバリル酸、クエン酸、酒石酸、テレフタル酸、などが挙げられるが、特にクエン酸が好ましく用いられる。その添加量は特に規定されるものではないが、好ましくは原料のラクチドにたいして0.0001重量%~1重量%、より好ましくは0.001重量%~0.1重量%である。

【0016】本発明のポリ乳酸組成物の製造法において好ましく用いられる触媒としてはまずAl(Acac)₃が挙げられる。同触媒を用いて得られたポリ乳酸組成物は非常に熱安定性に優れている。本発明におけるAl(Acac)₃触媒の使用量は、ラクチドに対して好ましくは0.15~5モル%、より好ましくは0.3~3

50

(4)

特開平10-287736

5

モル%である。0.15モル%未満では得られるポリ乳酸の重合度が十分ではなく、また、使用量が増えると得られるポリ乳酸の重合度は増加するが熱安定性は低下する傾向にあり、3~5モル%付近で重合度の増加が飽和し、それ以上ではむしろ重合度は低下する。

【0017】また、本発明のポリ乳酸組成物の製造において次に好ましく用いられる触媒はSn(Oct)であるがこの場合は使用量が厳しく限定される。これは前述したようにSn(Oct)がポリ乳酸の分解に対して高い触媒活性を持つため、重合生成物を再沈殿や洗浄等の精製操作を加えずに用いるためにはSn(Oct)の使用量はラクチドに対して0.003モル%以下であることが必須である。これより多いと、後の成形加工時に分解が進み著しく重合度が低下するため十分な強度をもつ製品が得られない。また、0.0001モル%未満では重合における触媒の効果がほとんど見られない。

【0018】本発明における重合温度は特に限定されるものではないが、重合の均一性のためには攪拌操作が必要であり、そのためには重合温度の下限は得られた重合生成物の融点以上であることが望ましい。例えば、ポリ乳酸ホモポリマーの場合には180℃以上であることが望ましい。また、重合温度の上限は200℃であることが好ましい。これは、200℃より高温ではラクチドとポリマーとの重合平衡がラクチド側に偏るために重合度が下がりにくなり、またラクチドの生成量が増大するためにポリマー収率が低下する。

【0019】また、重合に要する時間は通常は60~6000分であるが使用した触媒の量、重合温度、系内の水分量、共重合体の場合はモノマーの種類と量などによって異なるため、所望の重合度に達する時間を適宜選択すればよい。また、前述したように本反応は系中の水分量によって生成するポリ乳酸の重合度が左右されるため、反応系は無水雰囲気下であることが望ましく、窒素、アルゴン等の不活性ガス雰囲気下あるいは減圧下で重合させることが望ましい。また、反応終了後重合生成物を110~140℃の温度範囲に保持し、固相重合することで残存ラクチドを除くことも可能である。

【0020】本発明はポリ乳酸ホモポリマーのみならず、乳酸を主成分とする各種コポリマーにおいても適用が可能である。即ち、他のモノマーを配合、共重合させることにより、得られるポリ乳酸の結晶性や生分解速度、熱流動性を調節したりすることが可能となる。そのような効果のあるモノマーとしてはポリアルキレングリコール、多価アルコール、ヒドロキシカルボン酸、脂肪酸ポリエステル、ラクトン、ラクタム、環状カーボネートが挙げられ、同時に二種類以上の化合物を用いることも可能である。

【0021】ポリアルキレングリコールとしては例えばエチレングリコール、プロピレングリコール等の単独重

6

合体およびこれらの共重合体等を、多価アルコールとしてはエチレングリコール、プロピレングリコール、ネオペンチルグリコール、グリセリン、トリメチロールプロパン等を、ヒドロキシカルボン酸としてはグリコール酸、3-ヒドロキシ酪酸、3-ヒドロキシ吉草酸等を、脂肪酸ポリエステルとしては前記ヒドロキシカルボン酸の単独重合体および共重合体または各種脂肪族ジオールと脂肪酸カルボン酸の重合体等を、フクトンとしてはγ-ブチロラクトン、β-バレロラクトン、ε-カプロラクトン、グリコライド等を、ラクタムとしてはγ-ピロラクトム、β-バレロラクトム、ε-カプロラクトム等を、環状カーボネートとしてはプロピレンカーボネート等を挙げることができるが、これに限定されるものではない。

【0022】本発明の成形品は、前述のごとき本発明のポリ乳酸組成物を溶融成形して成る成形品である。前記成形品の例としては射出、押し出し等の各種成形品、フィルム、シートまたは未延伸もしくは延伸配向された繊維、さらには前記繊維からの繊維構造物（編み物、織物、不織布、紙、紐、テープ、ロープ、網など）、さらには合成皮革の様な前記フィルムやシートと繊維との複合物が挙げられるがこれに限定されるものではない。

【0023】これら成形品の用途としては、防虫、保温、防湿、遮光、防草用フィルム、シート、繊維構造物等の農業用用途、乗り物の内装や電気製品等の工業用用途、法面緑化保護用シート等の土木用途、床や壁材等の建築用途、使い捨て器具、使い捨て衣料、靴や靴等も含めた日用生活用品、玩具やゲーム機等を含めた遊具、生埋用品等を含めた衛生医療用途、漁網、釣り糸、各種養殖用ロープ、網等の漁業用用途等が挙げられるがこれらに限定される物ではない。

【0024】

【実施例】以下、実施例により本発明を詳述する。なおその前に本明細書における種々の特性値の測定法を記述する。

【0025】＜重量平均分子量＞クロロホルムを溶離液としたGPC（ゲル浸透クロマトグラフィー）によってポリマー部の重量平均分子量（以下、Mwと略記する）を測定した。なお、分子量校正曲線はポリスチレンを用いて作成した。

【0026】＜熱安定性評価法＞熱安定性評価の目的で、ポリ乳酸組成物を一定条件加熱による溶融処理を行った。試料を五酸化燐存在下、室温で24時間減圧乾燥し、その約3gを試験管にいれ酸素置換の後180℃のオイルバス中で1時間加熱した。ポリ乳酸組成物の溶融処理前（重合前）と溶融処理後（溶融後）のMwを前記の方法で測定し、下記式にて求められる熱安定性が70%を超えるものを、熱安定性が優れたポリ乳酸組成物と判定した。

熱安定性(%) = ポリ乳酸組成物のMw(溶融後) / 溶融前

(5)

特開平10 287735

7

リ乳酸組成物のMw(重合後) $\times 100$

【0027】<着色性評価法>重合によって得られたポリ乳酸組成物を熱板温度180℃のプレス機で2mmの厚さまで加熱加圧し、その後取り出し急冷した。得られた試料を白色の紙の上に置き、目視にてその着色性を評価した。

【0028】(実施例1) L-ラクチド(水分率10ppm, PLIRA(社製)60g(416mmol))とAl(Acac)₃0.675g(2.08mmol)、クエン酸0.06gを攪拌装置、窒素導入管を備えた反応容器に投入し、窒素置換の後、窒素気流下で180℃に加熱し開環重合させた。このとき触媒であるAl(Acac)₃の量は原料のL-ラクチドに対して0.5モル%、クエン酸は同様に0.1重量%であった。分子量の上昇が飽和した時点で反応を終了し重合生成物を系外に取り出した。得られたポリ乳酸組成物の特性は表1に示すとおりであった。得られたポリ乳酸組成物は無色で、重合後のMw31.8万および溶融処理後のMw27.7万から熱安定性は87.1%となり非常に熱安定

8

性に優れたものであった。

【0029】(比較例1) 実施例1においてクエン酸を用いない以外は実施例1と同様にしてポリ乳酸組成物を得た。各種特性値は表1に示す通りであり、熱安定性は優れているが淡黄色に着色したポリ乳酸組成物が得られた。

【0030】(実施例2) 実施例1におけるAl(Acac)₃にかえて該ラクチドに対して0.002モル%のSn(Oct)₂を触媒として用いた以外は実施例1と同様にして重合を行った。得られたポリ乳酸組成物の各種特性値は表1に示す通りであり、無色で熱安定性の優れたポリ乳酸組成物が得られた。

【0031】(比較例2) 実施例2においてクエン酸を用いない以外は実施例2と同様にしてポリ乳酸組成物を得た。各種特性値は表1に示す通りであり、熱安定性は優れているが淡黄色に着色した生成物となった。

【0032】

【表1】

		実施例1	比較例1	実施例2	比較例2
触媒 触媒量: mol%		Al(Acac) ₃ , 0.5		Sn(Oct) ₂ , 0.002	
クエン酸添加量 Wt%		0.1	0	0.1	0
着色性		無色	淡黄色	無色	淡黄色
Mw $\times 10^4$	重合後	31.8	37.8	27.4	26.8
	溶融後	27.7	32.5	20.9	21.0
熱安定性(%)		87.1	86.9	76.3	78.4

【0033】(実施例3) 実施例1において重合原料としてL-ラクチドに加えポリエチレングリコールPEG6000(水分率52ppm)2.4gを用いた以外は実施例1と同様にして重合を行った。得られたポリ乳酸組成物の各種特性値は表2に示す通りであり、ホモポリマーに比べて重合度は低いが無色で熱安定性の優れたポリ乳酸組成物が得られた。

【0034】(比較例3) 実施例4においてクエン酸を用いない以外は実施例3と同様にして重合生成物を得た。各種特性値は表2に示す通りであり、熱安定性は優れているが淡黄色に着色した生成物となった。

【0035】

【表2】

(6)

特開平10-287735

9

10

		実施例3	比較例3
触媒 触媒量: mol%		Al (Acac), 0.5	
クエン酸添加量 Wt%		0.1	0
着色性		無色	淡黄色
Mw ×10 ⁴	重合後	11.4	13.1
	溶解後	10.1	11.7
熱安定性 (%)		88.6	89.3

【0036】

【発明の効果】本発明のポリ乳酸組成物は熱安定性に優れているため、成形加工時に分子量の低下が小さく、高強度の製品を得ることができる。また、同組成物は着色がないため衣料用の繊維や、各種フィルム等に好適に應用できる。また、本発明の方法はラクチド溶解開環重合を利用しているため、容易に高分子量のポリ乳酸が得ら

れ、溶剤の除去等の後処理工程を必要としないので工業的価値が非常に高い。さらに本発明の成形品は高強度でかつ着色がないため、衣料用、日常生活用、医薬品材料用、医療材料用および農業、漁業、工業、建築、土木などの産業資材用に用いる粉末、繊維、フィルムおよび成形材料等として極めて好適である。

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁶

C08K 5/092

C08L 67/04

識別記号

FI

C08K 5/092

C08L 67/04